

Pengaruh Komposisi Terhadap Perilaku Membran Komposit PVA/Kitosan/Grafin Oksida yang Terikat Silang Asam Sulfat

Selvy Malita Munarsetya Maksumdan Eko Santoso

Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember (ITS)

Jl. Arief Rahman Hakim, Surabaya 60111 Indonesia

e-mail: eko.es39@gmail.com

Abstrak—Membran komposit PVA/kitosan untuk aplikasi (DMFC) dari PVA dan kitosan dengan variasi komposisi (1:5; 2:4; 3:3; 4:2; 5:1) yang terikat silang asam sulfat telah disintesis. Komposisi PVA/kitosan terbaik dari uji ketahanan termal dan uji kuat tarik yaitu 3:3. Penambahan kitosan menyebabkan tingginya nilai *tensile strength*, namun menurunkan nilai *break elongation*. Penambahan PVA menyebabkan suhu onset meningkat dan persen *weight loss* menurun. Penambahan variasi GO (0-2%) bertujuan mengetahui pengaruh terhadap *water uptake* dan *methanol uptake*. Persentase *water uptake* meningkat seiring bertambahnya kadar GO dan persentase *methanol uptake* menurun hingga kadar GO 1,5% dan meningkat pada kadar GO 2%.

Kata Kunci—Membran, Kitosan, PVA, Grafin Oksida, Asam Sulfat, DMFC, Konduktivitas proton.

I. PENDAHULUAN

Salah satu sumber energi menjanjikan yang dapat menjadi solusi untuk mengatasi pencemaran lingkungan dan krisis energi di masa depan adalah sel bahan bakar (*fuel cell*). Terdapat berbagai macam sel bahan bakar. Salah satunya yaitu *Direct Methanol Fuel Cell* (DMFC). DMFC merupakan sel bahan bakar yang menggunakan sumber energi berupa metanol. Keuntungan dari penggunaan DMFC yaitu memiliki kepadatan energi yang lebih tinggi daripada baterai Li-ion [1], rangkainya cukup sederhana, penyimpanan yang mudah, suhu operasi yang relatif rendah, sumber energi dapat diperbarui dan emisi yang dihasilkan rendah [2]. Pada DMFC ini masih terdapat berbagai permasalahan, salah satunya pada membran penukar proton (PEM) yang digunakan. Selama ini membran yang sudah banyak digunakan belum memberikan hasil yang optimal untuk kinerja DMFC. Salah satu membran yang dikomersialkan yaitu membran Nafion.

Nafion umumnya digunakan karena stabilitas kimia, sifat mekanika dan elektrokimia yang sangat baik serta kelembaban rendah (<30%) [3]. Namun, saat ini harga Nafion dipasaran masih sangat mahal, sehingga akan menjadi kendala jika dikembangkan di Indonesia. Selain itu, Nafion memiliki konduktivitas proton tinggi hanya pada suhu kamar (~0,1 S/cm), ketika suhu tinggi kemampuan konduktivitas protonnya menurun yang menyebabkan kinerja DMFC juga menurun [4], sehingga dapat disimpulkan bahwa membran Nafion murni tidak cocok digunakan untuk DMFC. Oleh karena itu pada

saat ini banyak penelitian yang mengembangkan bahan polimer yang lebih murah dan mudah didapat untuk menggantikan fungsi dari Nafion.

Bahan - bahan polimer tersebut seperti Kitosan dan PVA. Kitosan merupakan polimer linear yang tidak beracun, mudah terurai dan polielektrolit kationik karena memiliki gugus amin yang bermuatan positif [5]. Poli (vinil) alkohol (PVA) adalah salah satu polimer penghambat metanol terbaik karena memiliki selektivitas yang tinggi terhadap air dan metanol. PVA menunjukkan nilai permeabilitas metanol dua kali lipat lebih rendah daripada membran Nafion. Selain itu, keuntungan dari PVA yaitu biodegradable, murah, memiliki kekuatan mekanik dan kimia yang sangat tinggi serta stabilitas termal yang baik.

Penelitian menggunakan bahan polimer PVA dan kitosan telah banyak dilakukan. Membran kitosan yang diikat silang dengan asam sulfat dibandingkan dengan Nafion 117 dalam kinerja DMFC. Nafion 117 menunjukkan hambatan proton lebih tinggi yaitu 284 s/cm daripada membran kitosan 204 s/cm. Fluks proton yang melintasi membran kitosan sebesar 2,73 mol/cm²s dan 1,12 mol/cm²s untuk Nafion [6]. Selain itu, untuk meningkatkan konduktivitas proton sebuah membran, beberapa penelitian menggunakan bahan anorganik yang ditambahkan ke dalam sebuah membran untuk meningkatkan sifat selektif terhadap proton.

Beberapa penelitian menggunakan bahan anorganik seperti SiO₂, zeolit, MMT dan polipirol [7]. Salah satu penelitian melaporkan nilai permeabilitas metanol menurun dari 1,95×10⁻⁶ menjadi 1,26×10⁻⁶ cm²/s ketika MMT 5% berat. Namun, konduktivitas proton menurun secara linier (0,096-0,077 S/cm) ketika material MMT meningkat dari 0 sampai 10% berat di dalam Nafion [8]. Pada penelitian lain menyebutkan bahwa suatu membran yang ditambahkan dengan material anorganik menjadi rapuh dan kurang konduktif, hal ini dikarenakan beban yang tinggi dari bahan anorganik tersebut [9]. Semua penelitian yang dikembangkan dilakukan untuk mencapai tujuan yang sama yaitu menurunkan permeabilitas metanol. Namun, pendekatan tersebut sering secara signifikan mengurangi konduktivitas proton.

Banyak penelitian berusaha menemukan bahan-bahan baru untuk meningkatkan konduktivitas proton. Salah satunya yaitu Grafin Oksida (GO). GO merupakan bahan organik yang banyak digunakan untuk beberapa aplikasi karena mempunyai sifat termal dan mekanik yang luar biasa. Lembaran grafin oksida dapat disebut sebagai bahan ampifilik dengan daerah

hidrofilik yang mengandung gugus, hidroksil, karboksilat, epoksida dan daerah hidrofobik yang terdiri dari karbon sp^2 [10]. Banyaknya gugus fungsi pada permukaan GO dapat digunakan sebagai situs penahan. GO merupakan insulator elektronik dengan konduktivitas diferensial. Membran yang digabungkan dengan GO memberikan nilai konduktivitas proton yang tinggi, hal ini dikarenakan adanya ikatan hidrogen pada GO. Gugus fungsi seperti asam karboksilat dan ikatan hidrogen antar molekul memberikan tambahan jalur untuk memperbanyak proton [11].

Padapenelitian ini akan dibuat membran PVA/Kitosan yang diikat silang dengan asam sulfat dengan menambahkan grafin oksida untuk meningkatkan konduktivitas proton. Grafin oksida ditambahkan kedalam membran dengan variasi 0-2% berat membran. Penambahan GO dilakukan dengan metode pencampuran dengan mendispersikan GO terlebih dahulu kedalam air.

II. METODOLOGI PENELITIAN

1) Sintesis Grafin Oksida

Grafit oksida disintesis dari serbuk grafit sintetik. Sebanyak 2 g serbuk grafit, 2 g $NaNO_3$ dan 92 mL H_2SO_4 18M dicampur dan diaduk di dalam penangas es selama 60 menit. Kemudian, 6g $KMnO_4$ ditambahkan perlahan ke dalam larutan dan ditambahkan 92 mL aqua DM diikuti dengan pengadukan pada 35°C selama 1 hari untuk membentuk pasta kental. Yang terakhir, 280 mL aqua DM dan 20 mL H_2O_2 (30%) dituangkan ke dalam campuran secara berurutan. Larutan ini kemudian disaring dan hasil penyaringan dibilas dengan aqua DM dan 3% larutan HCl. Hasil penyaringan kemudian dicampur dan dicuci dengan aqua DM beberapa kali. Sampel yang dihasilkan kemudian dikeringkan dalam oven pada suhu 110°C selama 24 jam [12]. Grafit oksida yang didapat dikarakterisasi dengan FTIR untuk menentukan gugus fungsi yang terbentuk. Grafit oksida yang berhasil disintesis didispersikan ke dalam aqua DM (0,1%) (m/v) menggunakan *ultrasonic bath* dengan daya 100 W selama 6 jam sampai seluruh GO terdispersi [9]. Massa GO yang digunakan yaitu 0,5-2% berat membran.

2) Sintesis Membran PVA/kitosan

Membran komposit PVA/kitosandibuat dengan ketebalan 0,25 mm. Serbuk PVA dan kitosan ditimbang dengan perbandingan massa PVA : kitosan = 1:5, 2:4, 3:3 4:2, 5:1. PVA dilarutkan dalam aqua DM (4%) (m/v) dan kitosan dilarutkan dalam asam asetat 2% pada suhu 70 °C diikuti pengadukan sampai larut. Setelah semua larut, keduanya dicampur, diaduk dan dipanaskan hingga homogen. Selanjutnya, larutan dituang ke dalam cetakan membran yang terbuat dari mika dengan ukuran 16 x 8 cm. Larutan membran komposit dikeringkan pada suhu ruang sampai pelarutnya menguap dan membran terkelupas dari cetakan. Membran yang terbentuk direndam dalam asam sulfat 0,5M selama 90 menit sebagai proses ikat silang. Membran yang telah terikat silang dikarakterisasi dengan TGA dan alat uji tarik untuk mengetahui ketahanan termal dan kuat tariknya.

3) Sintesis Membran PVA/kitosan/grafin oksida

Pelarutan PVA dan Kitosan dilakukan seperti pada proses sintesis membran PVA/Kitosan. Massa PVA dan kitosan yang digunakan sebesar 1,845 gram dan 1,646 gram. Dispersi GO dimasukkan kedalam larutan PVA dan diaduk selama 15 menit pada suhu 70°C, selanjutnya campuran PVA/GO dituangkan kedalam larutan kitosan dan diaduk selama 3 jam pada suhu 70°C. Larutan membran komposit PVA/Kitosan/GO dituang pada cetakan membran dan dibiarkan sampai kering. Selanjutnya membran diikat silang dengan asam sulfat dan disiapkan untuk karakterisasi *water uptake* dan *methanol uptake* [13].

4) Karakterisasi Grafit Oksida menggunakan FTIR

Karakterisasi gugus fungsi terhadap grafit dan grafit oksida dilakukan menggunakan *Fourier Transform Infra Red* (FTIR). Analisis dilakukan pada panjang gelombang 500-4500 cm^{-1} . Terlebih dahulu serbuk grafit dipreparasi dengan digerus dan ditambah dengan KBr kemudian dibentuk pelet.

5) Uji Ketahanan Termal Membran dengan TGA

Dekomposisi termal dari membran diuji menggunakan alat *Thermogravimetric Analyzer* (TGA) (Mettler Toledo) yang dilengkapi dengan DSC. Membran yang akan diuji dipotong dengan massa 5-10 mg terlebih dahulu. Suhu maksimum yang digunakan yaitu 250°C dengan kecepatan analisis 5°C/menit. Alat ini menggunakan Nitrogen sebagai atmosfernya.

6) Uji Tarik Membran PVA/kitosan

Stabilitas mekanika membran diukur menggunakan *Strograph VG 10-E*. Membran yang akan diuji terlebih dahulu dipotong membentuk ukuran sesuai SNI. Ketebalan membran yaitu 0,3 mm. Kecepatan regangan yang digunakan yaitu 10 mm/menit dengan kuat tarik 100N. Pengukuran dilakukan pada suhu ruang.

7) Uji Water Uptake dan Methanol Uptake

Water Uptake dan *Methanol Uptake* dilakukan dengan cara mengukur perbedaan berat membran sebelum dan sesudah direndam dalam air atau metanol. Berat kering (W_{dry}) diukur dari membran yang dikeringkan selama 24 jam pada suhu ruang. Berat basah (W_{wet}) diukur dari membran yang direndam pada air atau metanol 5M selama 24 jam. Persentase *water uptake* dan *methanol uptake* dapat dihitung menggunakan persamaan 2.1.

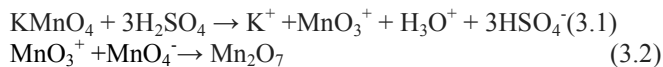
$$\%Water\ Uptake/Methanol\ Uptake = \frac{W_{wet} - W_{dry}}{W_{dry}} \times 100\% \quad (2.1)$$

III. HASIL DAN PEMBAHASAN

A. Hasil Sintesis Grafin Oksida

Grafit oksida disintesis menggunakan metode Hummers dan Offeman [12]. Grafit yang akan disintesis merupakan grafit sintetik. Tahap pertama pada proses ini yaitu mencampurkan 2 gram grafit dengan 2 gram $NaNO_3$ serta 92 mL H_2SO_4 98% ke dalam penangas es dan diaduk selama 60 menit. Larutan berwarna hitam keabu-abuan dan reaksi

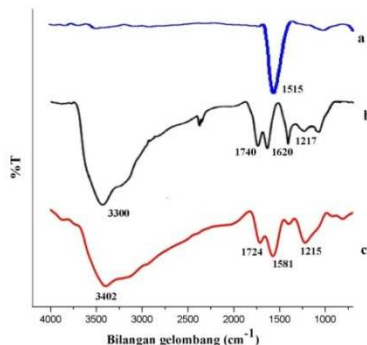
berjalan eksotermis. Selanjutnya ditambahkan 6 gram KMnO_4 sedikit demi sedikit dan ditambahkan 92 mL aqua DM dan diaduk pada suhu 35°C selama 24 jam. Larutan berubah warna menjadi hijau keunguan setelah penambahan zat tersebut. Penambahan KMnO_4 dilakukan secara bertahap dan juga ditambahkan aqua DM karena pada saat ditambahkan KMnO_4 reaksi berjalan eksotermis hingga mencapai suhu 98°C , sehingga untuk mencegah suhu naik drastis penambahan zat ini dilakukan sedikit demi sedikit dan juga ditambahkan aqua DM. Pada saat pencampuran terjadi reaksi antara H_2SO_4 dengan KMnO_4 yang ditunjukkan pada persamaan 3.1 dan 3.2.



Selama pengadukan 24 jam terjadi perubahan warna yang awalnya hijau keunguan menjadi coklat tua dan juga larutan menjadi lebih kental. Selanjutnya ditambahkan 280 mL aqua DM dan 20 mL H_2O_2 30% ke dalam campuran secara berurutan lalu diaduk hingga larutan benar-benar homogen, warna larutan menjadi kuning keemasan. Setelah homogen, larutan disaring menggunakan kertas saring dan residu yang didapat dibilas dengan HCl 3% dan aqua DM hingga pH netral. Sampel yang dihasilkan kemudian dikeringkan menggunakan oven dengan suhu 100°C selama 24 jam.

Penambahan H_2O_2 berfungsi untuk menghilangkan kotoran yang mungkin menempel pada permukaan karbon misalnya pengotor dari sisa oksidator yang digunakan. Akan tetapi kemampuan H_2O_2 dalam menghilangkan pengotor di permukaan karbon cukup terbatas, zat ini tidak mampu menghilangkan ion-ion logam yang mungkin tertinggal, sehingga biasanya digunakan juga larutan HCl karena HCl mampu menghilangkan pengotor terutama pengotor yang berasal dari ion logam. Selain itu HCl dapat dengan mudah membentuk garam yang tidak berbahaya dengan ion-ion lain. [14].

Karakterisasi FTIR digunakan untuk mengidentifikasi fitur dari grafit oksida yang telah disintesis. Dengan FTIR dapat diketahui perbedaan gugus fungsi antara kedua senyawa. Gambar 1. menunjukkan spektra FTIR antara grafit dengan grafit oksida (GO).



Gambar 1. Spektra FTIR (a) grafit, (b) grafit oksida (Jiang dan Manthiram, 2013) dan (c) grafit oksida penelitian ini

Gambar 1(c) menunjukkan spektra grafit oksida yang berhasil disintesis, terdapat puncak serapan karakteristik dari gugus hidroksil (C-OH) yang *stretching* pada bilangan gelombang 3402 cm^{-1} , gugus karbonil (C=O) vibrasi *stretching* pada bilangan gelombang 1724 cm^{-1} , gugus (C-O) dari epoksi pada bilangan gelombang 1215 cm^{-1} , gugus (C=C) *stretching* pada bilangan gelombang 1640 cm^{-1} .

Hasil ini sesuai dengan karakterisasi yang telah dilakukan penelitian sebelumnya yang ditunjukkan pada Gambar 1(b) yaitu serapan gugus karboksilat/karbonil *stretching* pada 1740 cm^{-1} , C=C alifatik *stretching* pada 1620 cm^{-1} , dan C-OH *stretching* pada 3300 cm^{-1} (Jiang dan Manthiram (2013)). Sedangkan spektra pada grafit yang ditunjukkan Gambar 1(a). hanya muncul puncak tajam pada bilangan gelombang 1515 cm^{-1} yang mengindikasikan adanya ikatan C=C aromatik.

Proses sintesis dan karakterisasi gugus fungsi grafit oksida dengan FTIR telah berhasil, selanjutnya dilakukan tahap berikutnya yaitu mendispersikan GO ke dalam aqua DM. Proses dispersi ini berfungsi untuk merubah grafit oksida menjadi grafin oksida [9]. Dengan adanya gugus oksigen yang hidrofilik, GO dapat terkelupas menjadi nano partikel ketika didispersikan kedalam air sehingga membentuk larutan yang homogen [15].

B. Hasil Sintesis Membran PVA/kitosan

Karakterisasi membran komposit PVA/Kitosan dilakukan untuk mengetahui sifat fisik dari membran yang terbentuk. Karakterisasi yang dilakukan yaitu uji kuat tarik membran dan uji ketahanan termal. Uji termal digunakan untuk mengetahui sifat termal dari membran komposit dengan komposisi PVA/kitosan yang berbeda-beda.

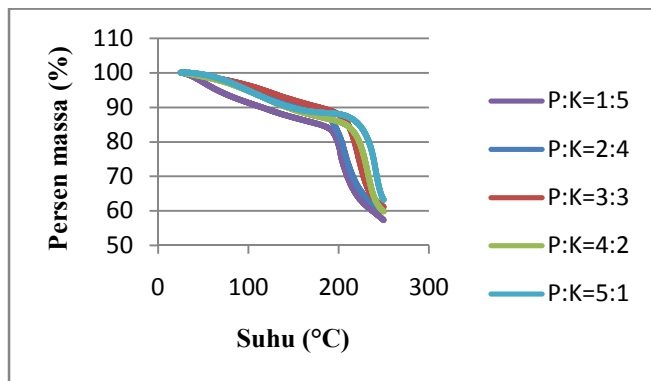
Tabel 1. Hasil Persentase *Weight Loss* membran PVA/Kitosan

Komposisi membran komposisi PVA : kitosan	<i>Weight loss</i> total (%wt)
1 : 5	40,3753
2 : 4	39,978
3 : 3	38,7827
4 : 2	40,0803
5 : 1	36,7915

Ketahanan termal dari masing-masing membran dapat dilihat pada suhu onset dan persen *weight loss* dari hasil uji menggunakan TGA. Tabel 1 menyajikan nilai persen *weight loss* dan suhu onset untuk masing-masing komposisi membran (PVA:kitosan) yaitu $198,53^\circ\text{C}$ (1:5), $199,10^\circ\text{C}$ (2:4), $210,24^\circ\text{C}$ (3:3), $214,69^\circ\text{C}$ (4:2), $229,84^\circ\text{C}$ (5:1). Suhu onset tertinggi dan persen *weight loss* terkecil terjadi pada membran dengan komposisi PVA:Kitosan = 5:1. Hal ini dikarenakan PVA murni mempunyai suhu degradasi gugus samping yaitu $250\text{--}350^\circ\text{C}$ sedangkan kitosan murni mempunyai suhu degradasi gugus samping yaitu $180\text{--}260^\circ\text{C}$ [16].

Hasil TGA pada Gambar 2 menunjukkan penurunan persen massa sampel terhadap suhu. Terjadi dua tahap dekomposisi untuk semua komposisi membran dari grafik yang ditunjukkan Gambar 2. Tahap dekomposisi pertama pada membran komposit PVA/kitosan terjadi pada suhu sekitar $30\text{--}170^\circ\text{C}$ yang menindikasikan hilangnya air pada membran

komposit, tahap dekomposisi kedua terjadi pada suhu sekitar 200-250°C yang mengindikasikan terdegradasinya rantai sampling dari membran komposit.



Gambar 2. Grafik TGA membran PVA/Kitosan perubahan persen massa terhadap suhu

Uji tarik pada membran digunakan untuk mengetahui elastisitas dan kemampuan membran menahan beban yang diberikan. Tabel 2 menunjukkan nilai *break elongation* dan *tensile strength* yang didapat setelah dilakukan uji dari tiap komposisi membran. *Break elongation* merupakan regangan sampel pada saat sampel diberi gaya hingga patah, sehingga nilai *break elongation* pada membran merupakan regangan membran. Persen *break elongation* meningkat seiring dengan meningkatnya komposisi PVA dalam membran. *Break elongation* tertinggi ditunjukkan pada membran dengan komposisi PVA:kitosan (5:1) yaitu 149,35%. Hal ini terlihat bahwa komposisi PVA lebih banyak 5 kali dibandingkan dengan kitosan. Sehingga disimpulkan semakin banyak komposisi PVA dalam membran semakin besar persen *break elongation*.

Tabel 2. Hasil uji tarik membran PVA/Kitosan

Komposisi membran komposit PVA : kitosan	<i>Break elongation</i> (%)	<i>Tensile Strength</i> (Mpa)
1:5	2,95	26,1
2:4	24,25	27,5
3:3	43,45	27,8
4:2	67,83	26,1
5:1	149,35	22,3

Tensile strength merupakan tahanan maksimum yang dapat ditahan oleh bahan ketika diberi gaya sebelum bahan tersebut patah. Pada Tabel 2 menunjukkan nilai *tensile strength* terbesar terletak pada membran komposit dengan komposisi 3:3. Hal ini terlihat bahwa komposisi PVA dengan kitosan seimbang sehingga memungkinkan tahanan yang diberikan cukup besar bila dibandingkan dengan komposisi lainnya. Selain itu kitosan murni mempunyai ketahanan mekanika yang baik bila dibandingkan dengan PVA. Oleh karena itu, komposisi kitosan yang lebih banyak pada membran memberikan nilai *tensile strength* yang lebih besar

dibandingkan membran dengan komposisi PVA yang lebih banyak.

Kedua uji yang telah dilakukan disimpulkan bahwa komposisi membran terbaik dengan pengikat silang asam sulfat yang diuji berdasarkan uji tarik dan uji termal yaitu membran dengan komposisi PVA/Kitosan = 3:3. Hal ini dikarenakan pada hasil uji tarik menunjukkan nilai *tensile strength* terbesar pada perbandingan 3:3, selain itu uji termal membran dengan komposisi 3:3 menunjukkan ketahanan termal yang cukup baik yaitu suhu onset 210,24°C dengan pengurangan massa 39%, meskipun pada komposisi ini bukan merupakan hasil terbaik pada uji termal.

Hal ini ditinjau juga dari fungsi membran yang dibuat. Membran yang dibuat pada penelitian ini yaitu membran yang diaplikasikan untuk DMFC. Pada DMFC diperlukan membran yang mempunyai keelastisan tidak terlalu tinggi namun mempunyai tahanan terhadap gaya yang besar. Hal ini dikarenakan membran *fuel cell* harus mampu menahan perbedaan tekanan antara kedua larutan yang berada di dalam rangkain dan juga tidak mudah terdekomposisi pada suhu tinggi.

C. Hasil Sintesis Membran PVA/kitosan/grafin oksida

Dilakukan uji *water uptake* dan *methanol uptake* terhadap membran komposit PVA/Kitosan/GO untuk mengetahui seberapa besar kemampuan membran dalam menyerap air dan metanol. Membran kering ditimbang dan dinyatakan sebagai berat kering (W_{dry}) selanjutnya membran direndam dalam aqua DM dan metanol 5M pada kondisi ruang selama 24 jam. Setelah 24 jam membran dibersihkan dengan tisu lalu ditimbang dan dinyatakan sebagai berat basah (W_{wet}). Kemudian persen *water uptake*/*methanol uptake* dihitung menggunakan persamaan 2.1.

Tabel 3 Hasil uji *water uptake* dan *methanol uptake*

Variasi GO dalam membran komposit (%)	<i>Water Uptake</i> (%)	<i>Methanol Uptake</i> (%)
0	67,68	71,74
0,5	82,44	69,67
1	92,37	65,55
1,5	96,47	63,37
2	104,38	64,86

Tabel 3 Menunjukkan nilai *water uptake* dan *methanol uptake* masing-masing membran komposit dengan variasi 0-2% GO. Proton yang melalui sebuah membran diangkut oleh molekul air diikuti juga lewatnya metanol selama pengoperasian. Pada tabel tersebut persen *water uptake* meningkat dengan bertambah kadar GO dalam membran. Hal ini dikarenakan beberapa kemungkinan, kemungkinan yang pertama yaitu terjadinya agregasi GO didalam membran, yang kedua yaitu karena GO, PVA dan kitosan sama-sama bersifat hidrofilik maka terjadi interaksi antara gugus -COOH pada GO dengan gugus -OH pada PVA dan kitosan [12]. Bertambahnya *water uptake* menunjukkan terjadinya pelebaran saluran ion, sehingga membuka jalan untuk transportasi air dan metanol [9].

Persen *methanol uptake* berpengaruh pada kemampuan membran menyerap metanol, sehingga dapat diprediksikan nilai permeabilitas metanol suatu membran. Permeabilitas metanol adalah lewatnya metanol kedalam suatu membran. Semakin banyak metanol yang melalui membran menyebabkan kinerja DMFC menurun, hal ini dikarenakan metanol berlebih yang menuju katoda dapat membanjiri katoda sehingga merusak rakitan elektroda [4] dan menyebabkan efisiensi bahan bakar berkurang. Persen *methanol uptake* yang ditunjukkan pada Tabel 4.3 menurun dengan bertambahnya kadar GO. Meskipun nilainya menurun, nilai persen *methanol uptake* yang dihasilkan pada variasi kadar GO seluruhnya masih diatas 50%, nilai ini dianggap masih terlalu besar untuk kemampuan menyerap metanol.

IV. KESIMPULAN/RINGKASAN

Berdasarkan hasil penelitian dan pembahasan yang telah dilakukan, dapat disimpulkan bahwa pengaruh komposisi terhadap perilaku membran komposit PVA/Kitosan/GO yang terikat silang asam sulfat sebagai berikut :

1. Pada uji mekanik, penambahan kitosan di dalam membran komposit meningkatkan *tensile strength*, dan penambahan PVA meningkatkan *break elongation*.
2. Penambahan PVA menyebabkan suhu dekomposisi / ketahanan termal membran komposit meningkat.
3. Bertambahnya Grafir Oksida dalam variasi 0-2% dalam membran komposit PVA/Kitosan yang terikat silang asam sulfat menyebabkan nilai *water uptake* meningkat. Namun menurunkan nilai *methanol uptake* hingga penambahan 1,5%.

UCAPAN TERIMA KASIH

Penulis berterima kasih kepada tim penelitian membran elektrolit, Laboratorium Kimia Material dan Energi dan Jurusan Kimia FMIPA ITS, serta semua pihak yang ikut membantu.

DAFTAR PUSTAKA

- [1] Ahmed M, Dincer I. (2011). "A review on methanol crossover in direct methanol fuel cells: challenges and achievements". *Int J. Energy Res* ;35:1213-28.
- [2] Yang, Z., Coutinho, D., Feng, F., Ferraris, J. P., & Balkus Jr, K. (2004). "Novel Inorganic/Organic Hybrid Electrolyte Membranes". *Prepr. Pap.-Am. Chem. Soc., Div. Fuel Chem*, 49(2), 599.
- [3] Zhou, W. J., Li, W. Z., Song, S. Q., Zhou, Z. H., Jiang, L. H., Sun, G. Q., ... & Tsiakaras, P. (2004). "Bi- and tri-metallic Pt-based anode catalysts for direct ethanol fuel cells". *Journal of Power Sources*, 131(1), 217-223.
- [4] Alberti, G., Casciola, M., Massinelli, L., & Bauer, B. (2001). "Polymeric proton conducting membranes for medium temperature fuel cells (110–160 °C)". *Journal of Membrane Science*, 185(1), 73-81.
- [5] Munawaroh, K., & Hastuti, E. (2013). "Electrical properties of CaCO₃ filled chitosan-PVA membranes".
- [6] Osifo, P. O., & Masala, A. (2010). "Characterization of direct methanol fuel cell (DMFC) applications with H₂SO₄ modified chitosan membrane". *Journal of Power Sources*, 195(15), 4915-4922.

- [7] Banerjee, S., K Kar, K., & K Das, M. (2014). "Electrolyte Membranes for Fuel Cells: Synthesis, Characterization and Degradation Analysis". *Recent Patents on Materials Science*, 7(3), 173-203
- [8] Kim, T. K., Kang, M., Choi, Y. S., Kim, H. K., Lee, W., Chang, H., & Seung, D. (2007). "Preparation of Nafion-sulfonated clay nanocomposite membrane for direct
- [9] Chien, H. C., Tsai, L. D., Huang, C. P., Kang, C. Y., Lin, J. N., & Chang, F. C. (2013). "Sulfonated graphene oxide/Nafion composite membranes for high-performance direct methanol fuel cells". *International journal of hydrogen energy*, 38(31), 13792-13801.
- [10] Geim AK, Novoselov KS. (2007). "The rise of grapheme". *Nat Mater*;6:1 83-91.
- [11] Xue, C., Zou, J., Sun, Z., Wang, F., Han, K., & Zhu, H. (2014). "Graphite oxide/functionalized graphene oxide and polybenzimidazole composite membranes for high temperature proton exchange membrane fuel cells". *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(15), 7931-7939.
- [12] Lin, C. W., & Lu, Y. S. (2013). "Highly ordered graphene oxide paper laminated with a Nafion membrane for direct methanol fuel cells". *Journal of Power Sources*, 237, 187-194.
- [13] Yang, J. M., & Wang, S. A. (2015). "Preparation of graphene-based poly (vinyl alcohol)/chitosan nanocomposites membrane for alkaline solid electrolytes membrane". *Journal of Membrane Science*, 477, 49-57.
- [14] Hou, P. X., Liu, C., & Cheng, H. M. (2008). Purification of carbon nanotubes. *Carbon*, 46(15), 2003-2025.
- [15] Gurunathan, S., Han, J. W., Dayem, A. A., Eppakayala, V., & Kim, J. H. (2012). Oxidative stress-mediated antibacterial activity of graphene oxide and reduced graphene oxide in *Pseudomonas aeruginosa*. *International journal of nanomedicine*, 7, 5901.
- [16] Yang, J. M., & Chiu, H. C. (2012). Preparation and characterization of polyvinyl alcohol/chitosan blended membrane for alkaline direct methanol fuel cells. *Journal of Membrane Science*, 419, 65-71.